

# Document made available under the Patent Cooperation Treaty (PCT)

International application number: PCT/JP05/005606

International filing date: 18 March 2005 (18.03.2005)

Document type: Certified copy of priority document

Document details: Country/Office: JP  
Number: 2004-085851  
Filing date: 24 March 2004 (24.03.2004)

Date of receipt at the International Bureau: 12 May 2005 (12.05.2005)

Remark: Priority document submitted or transmitted to the International Bureau in compliance with Rule 17.1(a) or (b)



World Intellectual Property Organization (WIPO) - Geneva, Switzerland  
Organisation Mondiale de la Propriété Intellectuelle (OMPI) - Genève, Suisse

日本国特許庁  
JAPAN PATENT OFFICE

18. 3. 2005

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出願年月日  
Date of Application: 2004年 3月24日

出願番号  
Application Number: 特願2004-085851

パリ条約による外国への出願  
に用いる優先権の主張の基礎  
となる出願の国コードと出願  
番号

The country code and number  
of your priority application,  
to be used for filing abroad  
under the Paris Convention, is

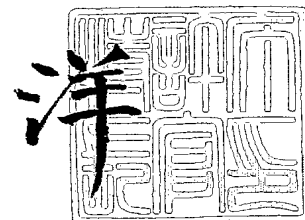
JP2004-085851

出願人  
Applicant(s): 本田技研工業株式会社

2005年 4月20日

特許庁長官  
Commissioner,  
Japan Patent Office

小川



【書類名】 特許願  
【整理番号】 PCQ18179HK  
【提出日】 平成16年 3月24日  
【あて先】 特許庁長官殿  
【国際特許分類】 H01M 8/02  
H01M 8/10  
H01M 4/00

【発明者】  
【住所又は居所】 埼玉県和光市中央1丁目4番1号 株式会社本田技術研究所内  
【氏名】 山田 隆之

【特許出願人】  
【識別番号】 000005326  
【氏名又は名称】 本田技研工業株式会社

【代理人】  
【識別番号】 100077665  
【弁理士】  
【氏名又は名称】 千葉 剛宏

【選任した代理人】  
【識別番号】 100116676  
【弁理士】  
【氏名又は名称】 宮寺 利幸

【選任した代理人】  
【識別番号】 100077805  
【弁理士】  
【氏名又は名称】 佐藤 辰彦

【手数料の表示】  
【予納台帳番号】 001834  
【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】  
【物件名】 特許請求の範囲 1  
【物件名】 明細書 1  
【物件名】 図面 1  
【物件名】 要約書 1  
【包括委任状番号】 9711295  
【包括委任状番号】 0206309

**【書類名】 特許請求の範囲****【請求項 1】**

アノード側電極とカソード側電極との間に電解質が配設されて形成され、1組のセパレータ間に介装される電解質・電極接合体において、

前記カソード側電極と前記セパレータとの間に、前記カソード側電極に比して電子伝導度が大きく、且つ酸素を還元することが可能な物質からなる層が設けられていることを特徴とする電解質・電極接合体。

**【請求項 2】**

請求項 1 記載の接合体において、前記層は、少なくとも、希土類元素 A、遷移金属元素 C、及び酸素 O を含有する複合酸化物であり、アルカリ土類金属元素を B で表すとき、組成式が  $A_x B_{1-x} C O_3$  (ただし、 $0.5 \leq x \leq 1.0$ ) である物質からなることを特徴とする電解質・電極接合体。

**【請求項 3】**

請求項 2 記載の接合体において、希土類元素 A が La、Sm、Nd、Pr の群から選択された少なくともいずれか 1 種であるとともに、遷移金属元素 C が Co、Fe、Ni、Cr、Mn、Ga の群から選択された少なくともいずれか 1 種であり、前記複合酸化物にアルカリ土類金属元素 B が含まれるときには、該アルカリ土類金属元素 B が Ca、Sr、Ba の群から選択された少なくともいずれか 1 種であることを特徴とする電解質・電極接合体。

**【請求項 4】**

請求項 2 又は 3 記載の接合体において、前記層がペロブスカイト型複合酸化物であることを特徴とする電解質・電極接合体。

**【請求項 5】**

請求項 1～4 のいずれか 1 項に記載の接合体において、前記層の厚みが  $10 \mu m$  以下であることを特徴とする電解質・電極接合体。

**【請求項 6】**

アノード側電極とカソード側電極との間に電解質が配設されて形成され、1組のセパレータ間に介装される電解質・電極接合体を製造する方法において、

前記アノード側電極を設ける工程と、

前記アノード側電極に酸化物イオンを移動させる電解質を積層した後、前記アノード側電極及び前記電解質に対して焼成処理を施す工程と、

焼成処理された前記電解質上に前記カソード側電極を設ける工程と、

前記カソード側電極上に、該カソード側電極に比して電子伝導度が大きく、且つ酸素を還元することが可能な物質からなる層を設ける工程と、

を有することを特徴とする電解質・電極接合体の製造方法。

**【請求項 7】**

請求項 6 記載の製造方法において、前記カソード側電極上に前記層を設けた後、該カソード側電極及び該層に対して焼成処理を施すことを特徴とする電解質・電極接合体の製造方法。

**【請求項 8】**

請求項 6 記載の製造方法において、前記カソード側電極に対して焼成処理を施した後に前記層を設け、次いで、該層に対して焼成処理を施すことを特徴とする電解質・電極接合体の製造方法。

**【請求項 9】**

アノード側電極とカソード側電極との間に電解質が配設されて形成され、1組のセパレータ間に介装される電解質・電極接合体を製造する方法において、

酸化物イオンが伝導可能に調製された物質の粉末を焼成処理して前記電解質を設ける工程と、

前記電解質の一端面に前記アノード側電極を設ける工程と、

前記電解質の他端面に前記カソード側電極を設ける工程と、

前記カソード側電極の露呈した端面に、該カソード側電極に比して電子伝導度が大きく、且つ酸素を還元することが可能な物質からなる層を設ける工程と、  
を有することを特徴とする電解質・電極接合体の製造方法。

【請求項 10】

請求項 9 記載の製造方法において、前記電解質の一端面に前記アノード側電極を積層する一方、前記電解質の他端面に前記カソード側電極及び前記層をこの順序で積層し、次に、前記アノード側電極、前記カソード側電極及び前記層に対して焼成処理を施すことを特徴とする電解質・電極接合体の製造方法。

【請求項 11】

請求項 9 記載の製造方法において、前記アノード側電極に対して焼成処理を施し、次いで、前記電解質に前記カソード側電極及び前記層を積層した後に該カソード側電極及び該層に対して焼成処理を施すことを特徴とする電解質・電極接合体の製造方法。

【請求項 12】

請求項 9 記載の製造方法において、前記アノード側電極に対して焼成処理を施し、次いで、前記電解質に前記カソード側電極を積層した後に該カソード側電極に対して焼成処理を施し、さらに、前記カソード側電極に前記層を積層した後に該層に対して焼成処理を施すことを特徴とする電解質・電極接合体の製造方法。

【書類名】明細書

【発明の名称】電解質・電極接合体及びその製造方法

【技術分野】

【0001】

本発明は、アノード側電極とカソード側電極との間に電解質が配設されて形成され、1組のセパレータ間に介装される電解質・電極接合体及びその製造方法に関する。

【背景技術】

【0002】

図6に、固体電解質型燃料電池(SOFC)の単位セル1の要部概略縦断面図を示す。この単位セル1は、酸化物イオン( $O^{2-}$ )伝導体からなる固体電解質2がアノード側電極3とカソード側電極4との間に配設されて構成された電解質・電極接合体5が、1組のセパレータ6a、6b間に介装されることによって構成される。

【0003】

セパレータ6a、6bには、複数のボス部7a、7bがアノード側電極3又はカソード側電極4に指向してそれぞれ突出形成されており、このため、ボス部7a、7b同士の間には凹部がそれぞれ設けられた形態となっている。すなわち、セパレータ6a、6bは、ボス部7a、7bでのみアノード側電極3又はカソード側電極4に当接する。ボス部7aがアノード側電極3に当接するセパレータ6aの凹部は、該アノード側電極3に燃料ガスを供給するための第1通路として使用され、その一方で、ボス部7bがカソード側電極4に当接するセパレータ6bの凹部は、該カソード側電極4に酸化剤ガスを供給するための第2通路として使用される。

【0004】

SOFCは、上記のように構成された単位セル1が所定個数だけ積層されることによって構成される。そして、前記第1通路に燃料ガス(例えば、水素含有ガス)が流通されるとともに前記第2通路に酸化剤ガス(例えば、空気)が流通されて運転が開始される。

【0005】

この運転の際、図7に拡大して示すように、カソード側電極4では、セパレータ6bのボス部7bを介して該カソード側電極4に到達した電子と、酸化剤ガス中の酸素との反応が起こり、その結果、酸化物イオン( $O^{2-}$ )が生成する。この酸化物イオンは、電解質内を伝導してアノード側電極3に到達し、該アノード側電極3に供給された燃料ガス中の水素と反応を起こす。これにより、水分と電子が生成する。このうち、電子は、燃料電池に電氣的に接続された外部負荷を付勢する電気エネルギーとして使用された後、セパレータ6bのボス部7bを介してカソード側電極4に到達する。

【0006】

ところで、上記から諒解されるように、カソード側電極4への電子の流入はボス部7bでのみ起こるので、ボス部7b近傍以外の箇所では酸素と電子とが反応することは困難である。換言すれば、燃料電池には、反応領域が小さいという不具合がある。

【0007】

反応領域を大きくするためには、ボス部7bの個数を増加すればよい。しかしながら、この場合、セパレータ6bを成形することや酸化剤ガスを流通させることが困難となるという不具合を招く。

【0008】

そこで、特許文献1には、カソード側電極(酸化剤極)とセパレータとの間に集電体を配設し、この中のカソード側電極と集電体との間に非酸化性の金属、例えば、Ag、Au、Pt、Pdを点在状態で付着させることが提案されている。該特許文献1によれば、カソード側電極と集電体の接触界面における交換電流密度を上昇させ、接触抵抗を低減させることができるので、燃料電池の性能向上を図ることができる、とのことである。

【0009】

また、特許文献2には、燃料電池の発電効率を向上させるべく、カソード側電極及びアノード側電極とセパレータとの間に集電体を配置するとともに、少なくともいずれか一方

の集電体を、電極側からセパレータ側に指向する方向に気孔率が大きくなる多孔質体で構成することが提案されている。

【0010】

さらに、特許文献3には、円筒型燃料電池において、セパレータと類似の機能を営むインターコネクタを、ランタンクロマイト層及びランタンクロマイトと酸化ニッケルの混合層の2層構造、又は、前記2層にさらに酸化ニッケル層を積層した3層構造とし、これにより電子導電性が高く且つ集電材との接触抵抗を小さくすることが提案されている。セパレータに層を設けることは、特許文献4にも記載されている。

【0011】

【特許文献1】特開2003-7318号公報

【特許文献2】特開2002-358980号公報

【特許文献3】特開2003-243001号公報

【特許文献4】特開平5-251092号公報

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

【0012】

しかしながら、特許文献1に記載された技術では、金属粉末を点在させるようにしているので、反応領域を大きくすることはできない。また、上記した金属は酸素を還元する能力がないので、カソード側電極における酸素の還元反応の効率を向上させることもできない。

【0013】

また、特許文献2に記載された電解質（多孔質体）を作製する場合、気孔率を漸次的に変化させる必要があるが、このような多孔質体を設けるためには、作業環境を厳密に管理しなければならない、煩雑である。

【0014】

そして、特許文献3又は特許文献4に記載された技術では、インターコネクタ又はセパレータを多層構造にしているが、前記単位セル1におけるセパレータ6bをこのような多層構造にしたとしても、該セパレータ6bとカソード側電極4はボス部7b以外では当接しないため、反応領域を増加させることはできない。

【0015】

本発明は上記した問題を解決するためになされたもので、カソード側電極における酸素の還元反応領域を大きくすることが可能であるとともに該還元反応の効率を向上させることが可能であり、このためにセパレータとカソード側電極との接触抵抗や、SOFCの過電圧を低減することが可能な電解質・電極接合体及びその製造方法を提供することを目的とする。

【課題を解決するための手段】

【0016】

前記の目的を達成するために、本発明は、アノード側電極とカソード側電極との間に電解質が配設されて形成され、1組のセパレータ間に介装される電解質・電極接合体において、

前記カソード側電極と前記セパレータとの間に、前記カソード側電極に比して電子伝導度が大きく、且つ酸素を還元することが可能な物質からなる層が設けられていることを特徴とする。

【0017】

このような構成とすることにより、カソード側電極側のセパレータに移動してきた電子が前記層の全域にわたって拡散する。その一方で、この層が酸素還元能を有するので、カソード側電極側のセパレータに供給された酸化剤ガス中の酸素は、セパレータとカソード側電極との当接箇所近傍のみならず、この層の全域で該層に拡散した電子によって還元される。

【0018】

すなわち、本発明によれば、酸素を還元させるための反応領域を著しく大きくすることができる。このため、過電圧を低減することができる。

#### 【0019】

しかも、前記層がカソード側電極に比して高い電子伝導度を示すので、カソード側電極にセパレータを直接当接させる場合に比して、両者間の接触抵抗を低減することもできる。

#### 【0020】

このように、本発明によれば、過電圧や接触抵抗を低減させることができるので、大電流密度であっても高電圧で発電する、換言すれば、電圧の損失が少ない燃料電池を構成することができる。

#### 【0021】

ここで、特表2003-501796号公報には、銅又は銅合金からなるカソード側電極が酸化することを抑制するべく、該カソード側電極を $Al_2O_3$ 等の耐酸化材料からなる層で被覆することが記載されている。すなわち、特表2003-501796号公報記載の発明においても、カソード側電極に層が設けられる。しかしながら、 $Al_2O_3$ は絶縁体であり、また、酸素還元能もないという点で、本発明と大きく相違する。

#### 【0022】

前記層の材質の好適な例としては、少なくとも、希土類元素A、遷移金属元素C、及び酸素Oを含有する複合酸化物であり、アルカリ土類金属元素をBで表すとき、組成式が $A_xB_{1-x}CO_3$ （ただし、 $0.5 \leq x \leq 1.0$ ）である物質を挙げることができる。

#### 【0023】

希土類元素Aの具体例としては、La、Sm、Nd、Prの群から選択された少なくともいずれか1種が挙げられ、遷移金属元素Cの具体例としては、Co、Fe、Ni、Cr、Mn、Gaの群から選択された少なくともいずれか1種が挙げられる。また、複合酸化物にアルカリ土類金属元素Bが含まれるときには、その具体例として、Ca、Sr、Baの群から選択された少なくともいずれか1種が挙げられる。

#### 【0024】

この種の化合物の代表的なものとしては、ペロブスカイト型複合酸化物を例示することができる。

#### 【0025】

なお、前記層の厚みは $10 \mu m$ 以下であることが好ましく、 $1 \sim 5 \mu m$ であることがより好ましい。厚みを小さくすることにより、カソード側電極の材質と熱膨張率が相違することに起因して該層がカソード側電極から剥離することを回避することができる。

#### 【0026】

また、本発明は、アノード側電極とカソード側電極との間に電解質が配設されて形成され、1組のセパレータ間に介装される電解質・電極接合体を製造する方法において、

前記アノード側電極を設ける工程と、

前記アノード側電極に酸化物イオンを移動させる電解質を積層した後、前記アノード側電極及び前記電解質に対して焼成処理を施す工程と、

焼成処理された前記電解質上に前記カソード側電極を設ける工程と、

前記カソード側電極上に、該カソード側電極に比して電子伝導度が大きく、且つ酸素を還元することが可能な物質からなる層を設ける工程と、

を有することを特徴とする。

#### 【0027】

このような手順で、アノード側電極の厚みが最大である支持膜型の電解質・電極接合体を得ることができる。この場合、電解質及びカソード側電極の各厚みを小さくすることができ、結局、厚みの小さい電解質・電極接合体を構成することができる。従って、燃料電池の積層方向の厚みを小さくすることもできる。

#### 【0028】

工程数を少なくするには、カソード側電極上に前記層を設けた後、該カソード側電極及



び該層に対して焼成処理を施すようにしてもよい。

【0029】

又は、カソード側電極に対して焼成処理を施した後に前記層を設け、次いで、該層に対して焼成処理を施すようにしてもよい。

【0030】

さらに、本発明は、アノード側電極とカソード側電極との間に電解質が配設されて形成され、1組のセパレータ間に介装される電解質・電極接合体を製造する方法において、

酸化物イオンが伝導可能に調製された物質の粉末を焼成処理して前記電解質を設ける工程と、

前記電解質の一端面に前記アノード側電極を設ける工程と、

前記電解質の他端面に前記カソード側電極を設ける工程と、

前記カソード側電極の露呈した端面に、該カソード側電極に比して電子伝導度が大きく、且つ酸素を還元することが可能な物質からなる層を設ける工程と、  
を有することを特徴とする。

【0031】

この手順によって、自立膜型の電解質・電極接合体を製造することができる。すなわち、本発明によれば、支持膜型、自立膜型のいずれの電解質・電極接合体も製造することが可能である。

【0032】

工程数を最も少なくするには、電解質の一端面にアノード側電極を積層する一方、電解質の他端面にカソード側電極及び前記層をこの順序で積層し、次に、アノード側電極、カソード側電極及び層に対して同時に焼成処理を施すようにすればよい。

【0033】

又は、アノード側電極に対して焼成処理を施し、次いで、電解質にカソード側電極及び前記層を積層した後に該カソード側電極及び該層に対して焼成処理を施すようにしてもよい。アノード側電極に対して焼成処理を施し、次いで、電解質にカソード側電極を積層した後に該カソード側電極に対して焼成処理を施し、さらに、カソード側電極に前記層を積層した後に該層に対して焼成処理を施すようにしてもよい。

【発明の効果】

【0034】

本発明によれば、セパレータとカソード側電極との間に、該カソード側電極に比して電子伝導度が大きく、且つ酸素還元能を有する材質からなる層を回想するようにしている。このため、セパレータとカソード側電極との接触抵抗が低減する。しかも、電子と酸素との反応領域が著しく大きくなるので、過電圧も低減する。従って、内部抵抗が低く、このために大電流密度であっても高電圧で放電する燃料電池を構成することができる。

【発明を実施するための最良の形態】

【0035】

本発明に係る電解質・電極接合体及びその製造方法につき好適な実施の形態を挙げ、添付の図面を参照して詳細に説明する。なお、図6及び図7に示される構成要素に対応する構成要素には同一の参照符号を付し、その詳細な説明を省略する。

【0036】

本実施の形態に係る電解質・電極接合体を有する燃料電池の単位セルの要部概略縦断面図を図1に示す。この単位セル10においては、アノード側電極3とカソード側電極4との間に固体電解質2が介装されており、これらが互いに接合されることにより電解質・電極接合体12が構成されている。

【0037】

この場合、アノード側電極3は、Niと、 $Y_2O_3$ が8mol%程度ドーパされた安定化 $ZrO_2$  (YSZ)との混合粉末の焼結体であるNiO/8YSZからなり、一方、カソード側電極4は、ペロブスカイト型酸化物である $La_{0.6}Sr_{0.4}Fe_{0.8}Co_{0.2}O_3$ からなる。また、固体電解質2はYSZ製である。

**【0038】**

電解質・電極接合体12は、さらに、カソード側電極4の一端面に設けられた電子拡散層14を有する。この電子拡散層14の材質としては、前記燃料電池の運転温度において、カソード側電極4の材質である $\text{La}_{0.6}\text{Sr}_{0.4}\text{Fe}_{0.8}\text{Co}_{0.2}\text{O}_3$ に比して電子伝導度が大きく、且つ酸素を還元することが可能な物質が選定される。そのような物質であれば特に限定されるものではないが、希土類元素A、遷移金属元素C、及び酸素Oを含有する複合酸化物を好適な例として挙げるができる。この種の複合酸化物の組成式は、 $\text{AC O}_3$ で表される。

**【0039】**

希土類元素Aの好適な例としては、La、Sm、Nd、Prの群から選択された少なくともいずれか1種を挙げることができ、一方、遷移金属元素Cの好適な例としては、Co、Fe、Ni、Cr、Mn、Gaの群から選択された少なくともいずれか1種を挙げるができる。このような複合酸化物の具体例としては、 $\text{LaCoO}_3$ が挙げられる。

**【0040】**

複合酸化物は、希土類元素Aの一部がアルカリ土類金属元素Bに置換されたものであってもよい。すなわち、複合酸化物は、組成式が $\text{A}_x\text{B}_{1-x}\text{CO}_3$ （ただし、 $0.5 \leq x \leq 1.0$ ）で表されるものであってもよい。

**【0041】**

アルカリ土類金属Bの好適な例としては、Ca、Sr、Baの群から選択された少なくともいずれか1種を挙げるができる。このようなアルカリ土類金属Bを含有する複合酸化物の具体例としては、 $\text{La}_{0.5}\text{Sr}_{0.5}\text{CO}_3$ が挙げられる。

**【0042】**

電子拡散層14の厚みが過度に大きいと、前記燃料電池を運転温度まで昇温した際、該電子拡散層14とカソード側電極4の熱膨張率の差に起因して、電子拡散層14がカソード側電極4から剥離したりすることがある。このような事態が生じることを回避するべく、電子拡散層14の厚みを $10\mu\text{m}$ とすることが好ましい。電子拡散層14の一層好ましい厚みは、 $1\sim 5\mu\text{m}$ の範囲内である。

**【0043】**

このように構成された電解質・電極接合体12が1組のセパレータ6a、6bによって挟持されることにより、単位セル10が構成される。これらセパレータ6a、6bにはボス部7a、7bがそれぞれ形成されており、このボス部7a、7b同士の間が、燃料ガスが流通される第1通路、又は酸化剤ガス流通される第2通路として機能する。

**【0044】**

本実施の形態に係る電解質・電極接合体12は、基本的には以上のように構成されるものであり、次にその作用効果について説明する。

**【0045】**

前記燃料電池は、この単位セル10が所定個数だけ積層されることによって構成される。そして、外部からセパレータ6aに燃料ガス（例えば、水素含有ガス）が流通されるとともに、セパレータ6bに酸化剤ガス（例えば、空気）が流通されて運転が開始される。

**【0046】**

燃料ガスが第1通路（ボス部7a同士の間）を通過してアノード側電極3に到達するとともに、酸化剤ガスが第2通路（ボス部7b同士の間）を通過して電子拡散層14の表面全域に到達する。その一方で、図2に拡大して示すように、カソード側電極4側に配置されたセパレータ6bのボス部7bには、アノード側電極3で生成して外部負荷を経由した電子が到達する。

**【0047】**

この電子は、ボス部7bから電子拡散層14に移動する。該電子拡散層14における電子伝導度がカソード側電極4に比して大きいため、この電子の移動は、ボス部7bからカソード側電極4に電子を直接移動させるよりも容易に起こる。すなわち、ボス部7bから電子拡散層14を経由してカソード側電極4に電子を移動させることにより、接触抵抗を

低減させることができる。なお、電子拡散層 14 が電子伝導性であることから、電子は、該電子拡散層 14 の全域にわたって拡散する。

#### 【0048】

上記したように、電子拡散層 14 は、酸素を還元することが可能な物質、例えば、 $\text{LaCoO}_3$  や  $\text{La}_{0.5}\text{Sr}_{0.5}\text{CoO}_3$  等からなる。このため、電子拡散層 14 の表面全域に拡散した酸化剤ガス中の酸素は、ボス部 7b から移動した電子と反応して還元され、酸化物イオンに変化する。

#### 【0049】

この還元反応は、電子拡散層 14 の全域で起こる。上記したように、ボス部 7b から移動した電子が酸素と同様に電子拡散層 14 の全域にわたって拡散しているからである。このことから諒解されるように、電子拡散層 14 を設けて電解質・電極接合体 12 を構成することにより、カソード側電極 4 におけるボス部 7b 近傍でのみ還元反応が生じる従来技術に係る電解質・電極接合体 5 (図 6 参照) に比して、反応領域を著しく大きくすることができる。このように反応領域が大きな電解質・電極接合体 12 を有する燃料電池では、過電圧が低減する。

#### 【0050】

すなわち、本実施の形態によれば、接触抵抗や過電圧が低減するので、前記燃料電池の内部抵抗が小さくなる。従って、この燃料電池においては、大電流密度で発電する際にも電圧降下の度合いが小さくなる。

#### 【0051】

ここで、電子拡散層 14 が設けられていない従来技術に係る電解質・電極接合体 5 を備える単位セル 1 と、電子拡散層 14 が設けられた本実施の形態に係る電解質・電極接合体 12 を備える単位セル 10 とに対し、電流密度を種々変化させて発電試験を行った際の端子電圧を併せて図 3 に示す。なお、単位セル 1、10 の双方において、アノード側電極 3、固体電解質 2、カソード側電極 4 は、それぞれ、 $\text{NiO}/8\text{YSZ}$ 、 $\text{YSZ}$ 、 $\text{La}_{0.6}\text{Sr}_{0.4}\text{Fe}_{0.8}\text{Co}_{0.2}\text{O}_3$  からなる。また、単位セル 10 における電子拡散層 14 は  $\text{LaCoO}_3$  からなり、発電試験では、各単位セル 1、10 の運転温度を  $700^\circ\text{C}$  として、水素の流量を  $20\text{ml}/\text{分}$ 、空気の流量を  $100\text{ml}/\text{分}$  とした。

#### 【0052】

この図 3 から、上記したように、電子拡散層 14 を設けることによって、発電セル (燃料電池) を大電流密度で発電させても電圧降下を小さくすることが明らかである。

#### 【0053】

電解質・電極接合体 12 は、次のようにして製造することができる。

#### 【0054】

始めに、電解質・電極接合体 12 が支持膜型である場合の製造方法につき、図 4 を参照して説明する。

#### 【0055】

この場合、先ず、アノード側電極 3 が作製される。具体的には、 $\text{NiO}$  と  $\text{YSZ}$  の混合粉末を、バインダ、溶媒、造孔材とともにプレス成形又はシート成形によってアノード側電極 3 の形状に成形加工する。この成形体を脱脂した後に仮焼して、仮焼体とする。

#### 【0056】

次いで、この仮焼体の一端面にペースト状の  $\text{YSZ}$  を印刷する。印刷方法としては、スクリーン印刷法等の公知方法を採用することができる。その後、 $1400^\circ\text{C}$  程度で焼成処理し、アノード側電極 3 を焼結体とするとともに固体電解質 2 を設ける。

#### 【0057】

次いで、固体電解質 2 上にペースト状の  $\text{La}_{0.6}\text{Sr}_{0.4}\text{Fe}_{0.8}\text{Co}_{0.2}\text{O}_3$  を印刷した後、さらに、このペースト上に電子拡散層 14 となる物質、例えば、 $\text{LaCoO}_3$  や  $\text{La}_{0.5}\text{Sr}_{0.5}\text{CoO}_3$  等のペーストを印刷する。そして、 $1000\sim 1200^\circ\text{C}$  程度で焼成処理を施せば、カソード側電極 4 と電子拡散層 14 とが固体電解質 2 上にこの順序で形成される。

## 【0058】

この場合、固体電解質 2 やカソード側電極 4 の厚みを小さくすることができるので、電解質・電極接合体 1 2、ひいては燃料電池の積層方向の厚みを小さくすることができるという利点がある。

## 【0059】

なお、図 4 に破線及び括弧で示したように、 $\text{La}_{0.6}\text{Sr}_{0.4}\text{Fe}_{0.8}\text{Co}_{0.2}\text{O}_3$  のペーストを固体電解質 2 上に印刷した後、焼成処理を行ってカソード側電極 4 を設けるようにしてもよい。この場合、カソード側電極 4 上に電子拡散層 1 4 となる物質のペーストを印刷すればよい。この場合、工程数が増加するものの、カソード側電極 4 を確実に設けることができる。

## 【0060】

いずれの場合においても、スラリーコートによって電子拡散層 1 4 を設けるようにしてもよい。

## 【0061】

次に、電解質・電極接合体 1 2 が自立膜型である場合の製造方法につき、図 5 を参照して説明する。

## 【0062】

この製造方法においては、固体電解質 2 が先ず作製される。すなわち、8YSZ の粉末を、バインダ及び溶媒とともにシート成形して固体電解質 2 の形状に成形加工する。この成形体を脱脂した後に焼成処理して、8YSZ からなるシート状の固体電解質 2 を設ける。

## 【0063】

次いで、固体電解質 2 の一端面に、 $\text{NiO}/8\text{YSZ}$  のペーストを印刷する。その一方で、他端面に  $\text{La}_{0.6}\text{Sr}_{0.4}\text{Fe}_{0.8}\text{Co}_{0.2}\text{O}_3$  のペーストを印刷した後、該ペースト上に、 $\text{LaCoO}_3$  や  $\text{La}_{0.5}\text{Sr}_{0.5}\text{CoO}_3$  等のペーストを印刷する。

## 【0064】

最後に、 $1000\sim1200^\circ\text{C}$  程度で前記 3 種のペーストを焼成処理して焼き付けられ、固体電解質 2 の一端面側にアノード側電極 3 が設けられ、且つ他端面側にカソード側電極 4 及び電子拡散層 1 4 が設けられた電解質・電極接合体 1 2 が得られるに至る。

## 【0065】

この製造方法では、両電極 3、4 を焼き付ける際の温度を比較的低くすることができる。

## 【0066】

なお、図 5 に破線及び括弧で示すように、カソード側電極 4 を焼き付けた後に電子拡散層 1 4 となるペーストを印刷するようにしてもよい。また、アノード側電極 3 を焼き付けた後にカソード側電極 4 となるペーストを印刷し、このペーストを焼き付けてカソード側電極 4 を設けた後に電子拡散層 1 4 となるペーストを印刷するようにしてもよい。

## 【0067】

勿論、電子拡散層 1 4 をスラリーコートによって設けるようにしてもよい。

## 【0068】

以上のようにして得られた電解質・電極接合体 1 2 から単位セル 10 を構成するには、さらに、アノード側電極 3 及びカソード側電極 4 の露呈した各一端面にセパレータ 6 a、6 b を配置すればよい。

## 【図面の簡単な説明】

## 【0069】

【図 1】本実施の形態に係る電解質・電極接合体を有する燃料電池の単位セルの要部概略縦断面図である。

【図 2】図 1 の要部拡大説明図である。

【図 3】図 1 の単位セルと、従来技術に係る単位セルとを種々の電流密度で発電させた際の端子電圧の変化を示すグラフである。

【図 4】 支持膜型の電解質・電極接合体の製造方法のフローチャートである。

【図 5】 自立膜型の電解質・電極接合体の製造方法のフローチャートである。

【図 6】 従来技術に係る電解質・電極接合体を有する燃料電池の単位セルの要部概略縦断面図である。

【図 7】 図 6 の要部拡大説明図である。

【符号の説明】

【0070】

1、10…単位セル

3…アノード側電極

5、12…電解質・電極接合体

7a、7b…ボス部

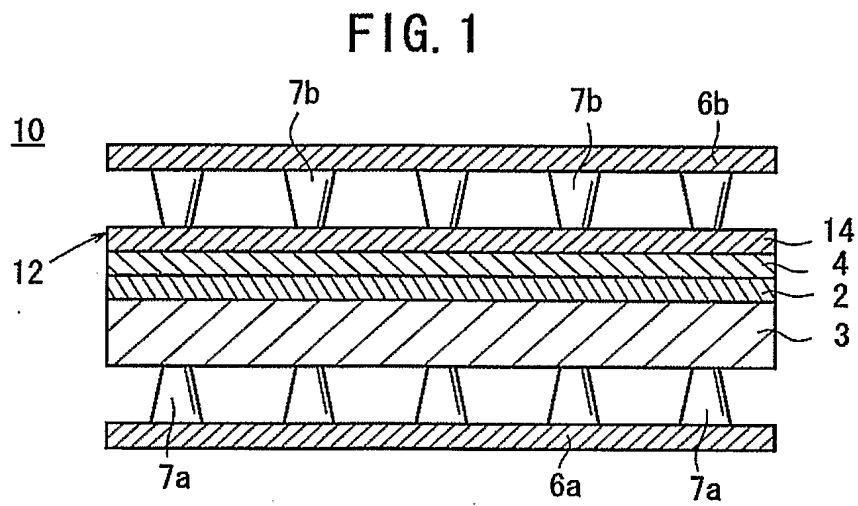
2…固体電解質

4…カソード側電極

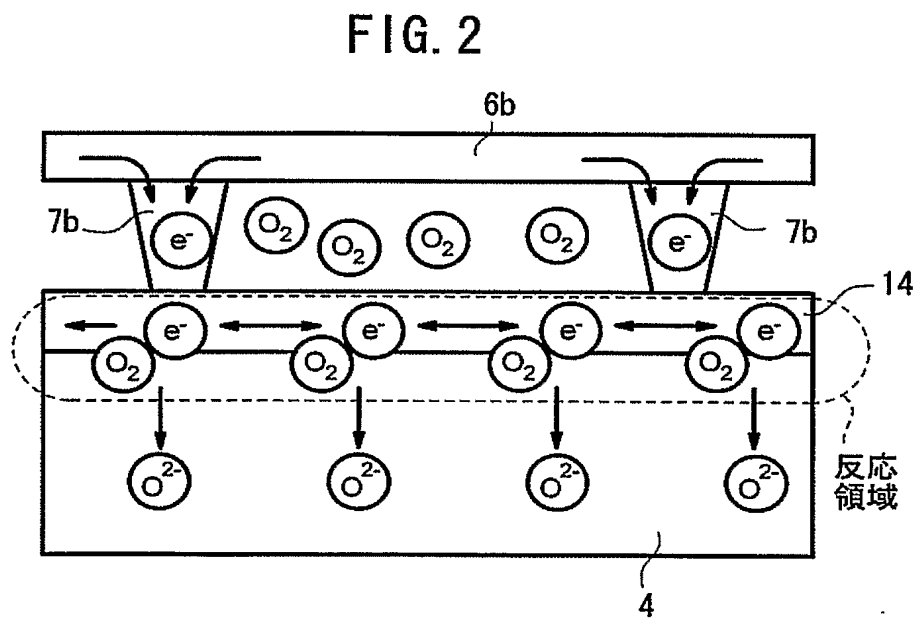
6a、6b…セパレータ

14…電子拡散層

【書類名】 図面  
【図 1】

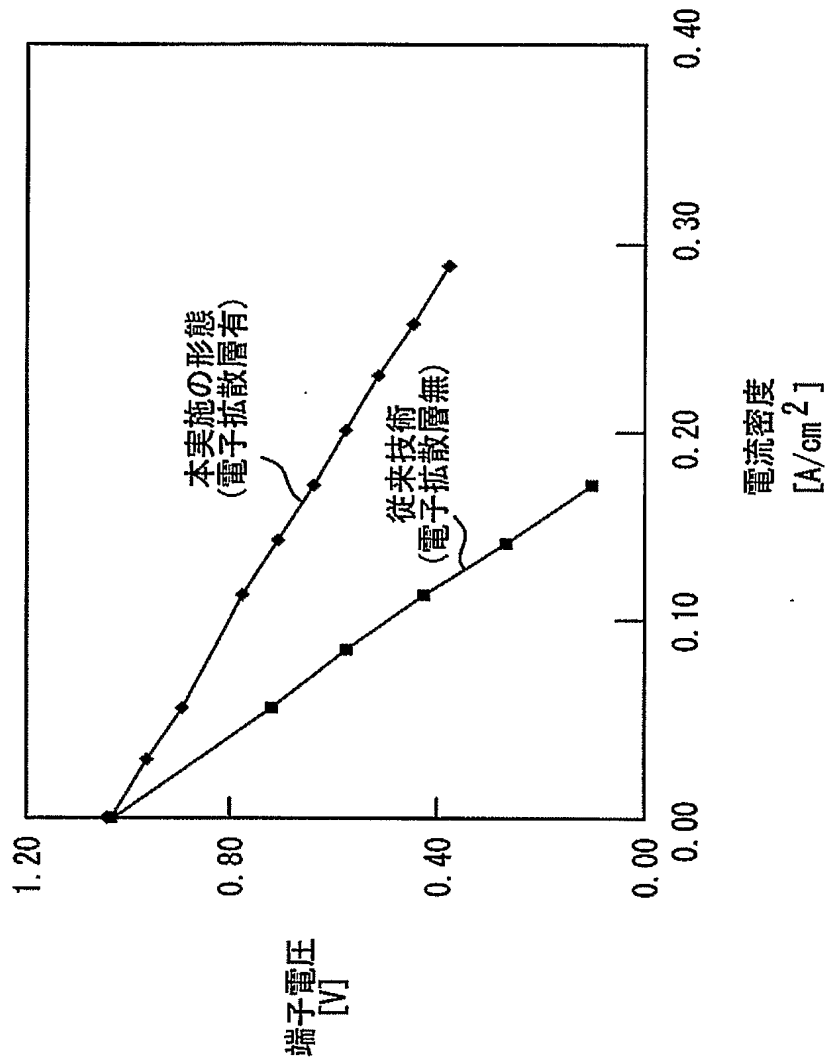


【図 2】



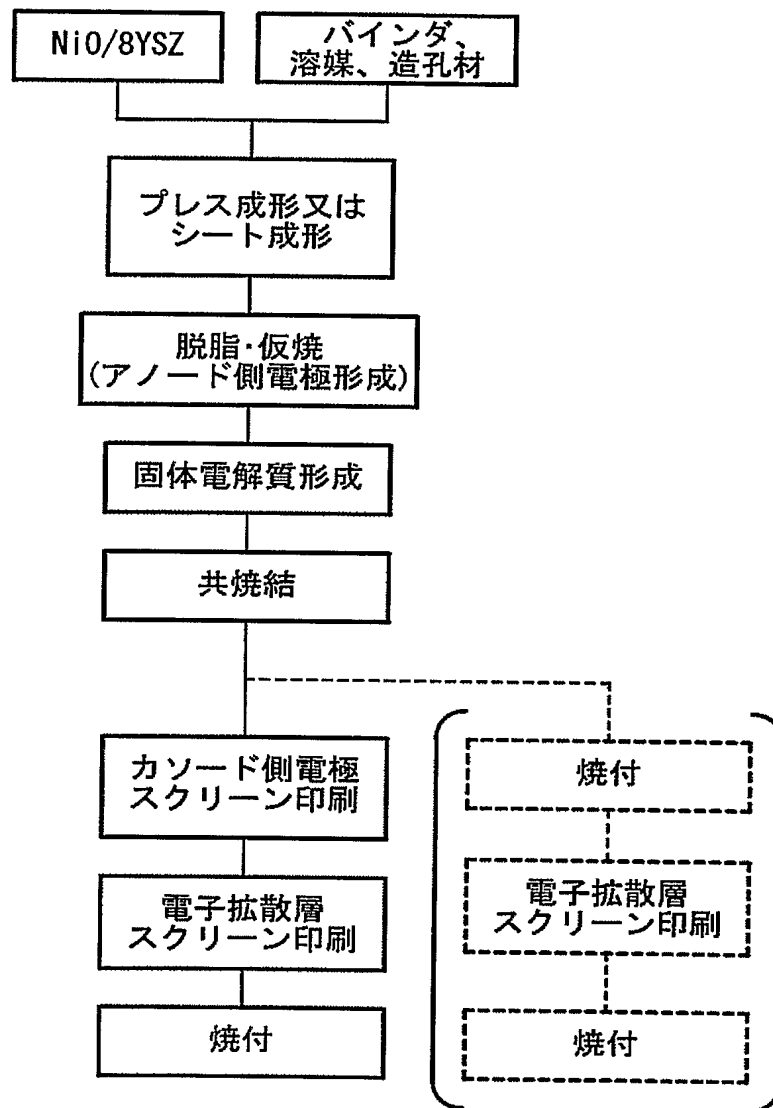
【図 3】

FIG. 3



【図 4】

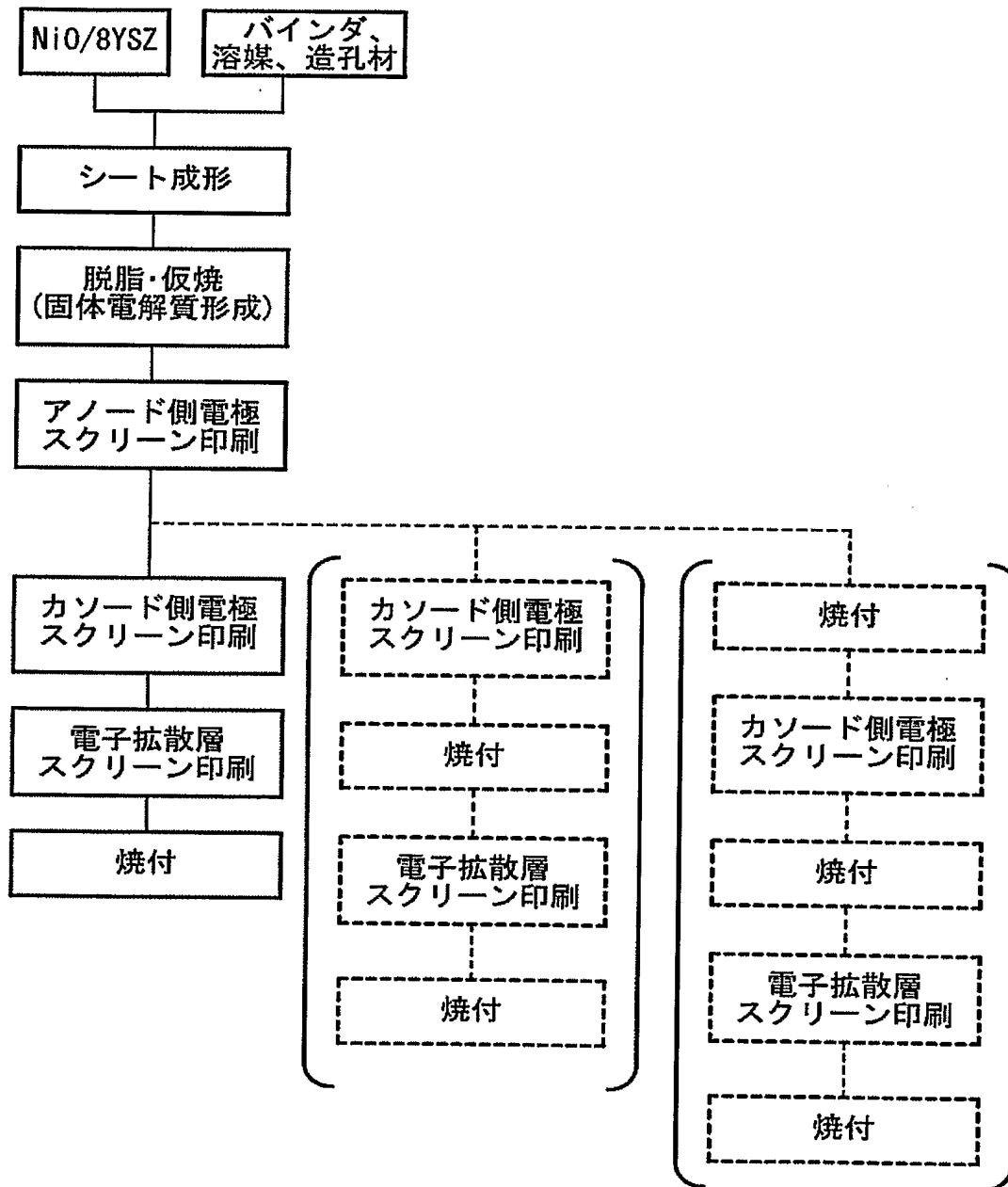
FIG. 4





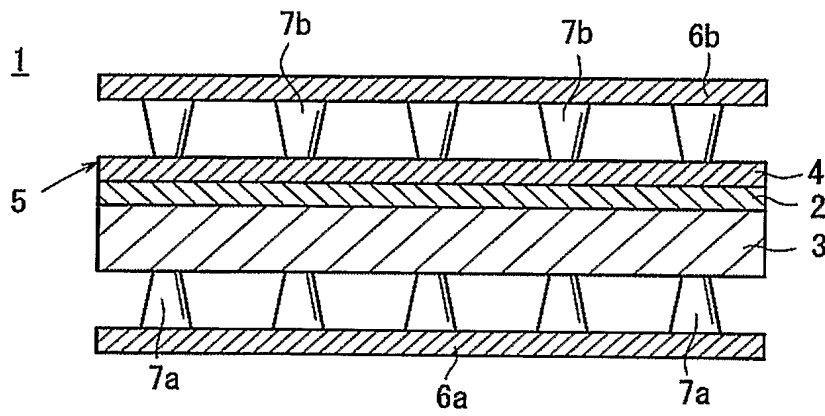
【図 5】

FIG. 5



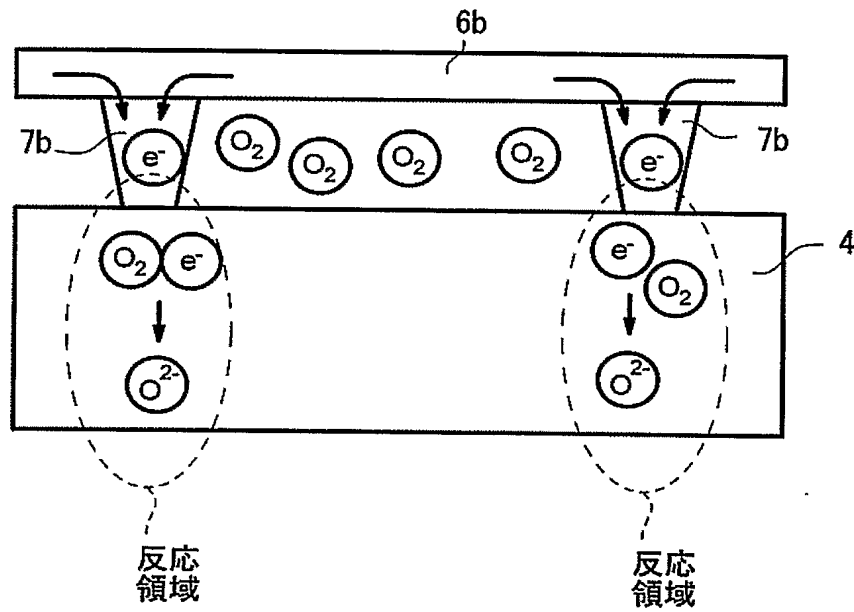
【図 6】

FIG. 6



【図 7】

FIG. 7



## 【書類名】 要約書

## 【要約】

【課題】 燃料電池において、セパレータとカソード側電極との接触抵抗や、過電圧を低減する。

【解決手段】 燃料電池を構成する単位セル 10 は、電解質・電極接合体 12 が 1 組のセパレータ 6 a、6 b 間に介装されることによって構成される。セパレータ 6 a、6 b には、アノード側電極 3 又はカソード側電極 4 にそれぞれ指向するボス部 7 a、7 b が突出形成されている。電解質・電極接合体 12 の一端面には、該電解質・電極接合体 12 側からセパレータ 6 b に向かってカソード側電極 4、電子拡散層 14 がこの順序で設けられており、セパレータ 6 b のボス部 7 b を介して電子拡散層 14 に到達した電子は、この電子拡散層 14 の全域に拡散する。この電子によって、ボス部 7 b 同士の間である第 2 通路を通過した酸化剤ガス中の酸素が還元され、その結果、酸化物イオン ( $O^{2-}$ ) が生成する。

【選択図】 図 1

特願 2 0 0 4 - 0 8 5 8 5 1

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号

[ 0 0 0 0 0 5 3 2 6 ]

1. 変更年月日

1 9 9 0 年 9 月 6 日

[変更理由]

新規登録

住 所

東京都港区南青山二丁目 1 番 1 号

氏 名

本田技研工業株式会社